

(Ba,Sr,Ca)TiO₃ 후막의 전기적 특성에 미치는 Dy₂O₃첨가의 영향

노현지*, 이성갑*, 이영희**, 남성필**
경상대학교*, 광운대학교**

The influence of doping Dy₂O₃ on electrical properties of (Ba,Sr,Ca)TiO₃ thick films

Hyun-Ji Noh*, Sung-Gap Lee*, Young-Hie Lee**, Sung-Pill Nam**
Gyeongsang National University*, Kwangwoon University**

Abstract - 페로브스카이트 구조의 (Ba,Sr,Ca)TiO₃ 분말에 Dy₂O₃ 불순물을 첨가하여 첨가량에 따른 영향을 연구하였다. 시편의 제작은 Screen-printing을 이용하여 후막으로 제작하였으며, 구조적인 특성과 전기적인 특성을 관찰하였다. XRD 회절 분석을 통하여 Dy₂O₃가 첨가된 모든 시편에서 이차상이 없는 전형적인 페로브스카이트 구조를 나타내었다. 시편의 미세구조를 관찰한 결과 grain size는 Dy₂O₃ 첨가량이 증가 할수록 감소하였으며, 기공은 증가하는 것을 알 수 있었다. 후막의 두께는 Dy₂O₃ 첨가량에 영향을 받지 않았으며 평균 두께는 69µm이었다. 큐리 온도는 Dy₂O₃ 첨가량에 따라 감소하였으며, 유전 손실은 상온 이상에서 1%이하로 크게 감소하였다.

1. 서 론

ABO₃ 구조의 페로브스카이트형 물질은 전자재료용 세라믹으로써 가장 일반적으로 알려져 있는 재료이다. 페로브스카이트 구조가 가지는 고유전율 특성을 이용하여 커패시터, DRAMs, 압전 액츄에이터, 적외선 검출기, 비선형 광학 소자 등에 응용되고 있다[1].

특히 강유전성의 BaTiO₃ 세라믹은 다양하고 우수한 전기적 특성을 활용하여 적층형 세라믹 커패시터, PTC 서미스터, 압전 변환재료, 비냉각 적외선 검출소자, 가변 공진기 등의 다양한 분야에 응용되는 재료이다[2].

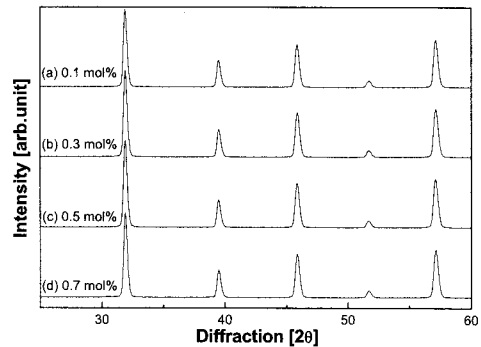
한편, 유전 특성과 결정립 크기의 영향에 대한 많은 연구가 진행되고 있으며, 결정립의 크기는 실험 조건과 합성 방법 등에 따라 영향을 받기가 쉽다. BaTiO₃의 유전특성에 관하여 fine-grained 다결정 세라믹이 단결정보다 높은 유전 상수를 가진다는 보고가 있다[3]. 본 연구에서는 BaTiO₃의 Ba²⁺ 이온자리에 Sr²⁺ 이온과 Ca²⁺ 이온을 치환시킨 (Ba,Sr,Ca)TiO₃ 분말에 불순물 Dy₂O₃의 양을 변화하여 첨가하고 그에 따른 구조적 특성과 전기적 특성을 연구하였다.

2. 실험 방법

(Ba_{0.54}Sr_{0.36}Ca_{0.10})TiO₃(BSCT(54/36/10))분말은 sol-gel 법에 따라 합성하였다. Ba acetate, Sr acetate, Ca acetate 와 acetic acid (CH₃COOH) 를 117 °C 에서 교반하여 수분을 제거하고 완전 용해시킨다. 60 °C 까지 냉각후 2-methoxyethanol 에 Ti iso-propoxide를 용해시킨 용액을 상기 용액에 첨가하여 2시간동안 교반한다. 안정화와 가수 분해를 위하여 교반된 H₂O와 2-methoxyethanol 혼합액을 상기 용액에 첨가한다. Gel화 된 상태의 BSCT 용액을 건조시키고 분쇄하여 알루미늄 도가니에 담고 800 °C에서 하소하였다. 하소 된 분말에 Acceptor로서 0.1 mol%의 MnCO₃ 를 첨가하고 ethyl alcohol에 넣어 24시간 불밀 하였다. 불밀 된 분말을 건조하여 분쇄하고 Dy₂O₃ 를 Donor로서 각각 0.1, 0.3, 0.5, 0.7 mol% 첨가하여 organic vehicle 과 함께 무거품 혼합기 (NBK-1, Kyoto Electro)에서 혼합하여 페이스트를 준비하였다. Pt 하부 전극을 도포한 알루미늄 기판에 준비된 페이스트를 screen-printing한다. 치밀화를 위해 0.5 ton/cm²으로 일축가압하고 1420 °C에서 2시간동안 소결하여 후막을 제작하였다. 소결을 마친 시편에 상부전극으로 Ag 페이스트를 도포하여 전기적 특성을 측정하였다.

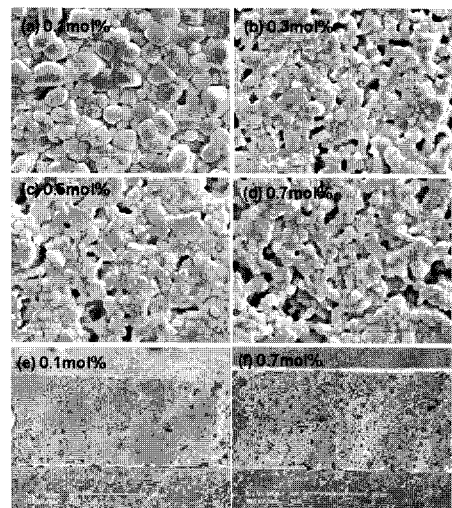
3. 결과 및 고찰

그림 1은 소결을 마친 Dy₂O₃ 첨가량에 따른 BSCT(54/36/10) 후막 시편의 XRD 분석 결과이다. 시편의 결정상 형성을 살펴보면 모든 후막에서 전형적인 입방정계의 페로브스카이트 구조를 나타내었다. 이차상이 없는 다결정성의 회절패턴을 나타내며 이것으로 보아 첨가된 Dy³⁺ 이온이 BSCT 구조에 완전히 고용되어 소결이 일어난 것으로 판단된다.



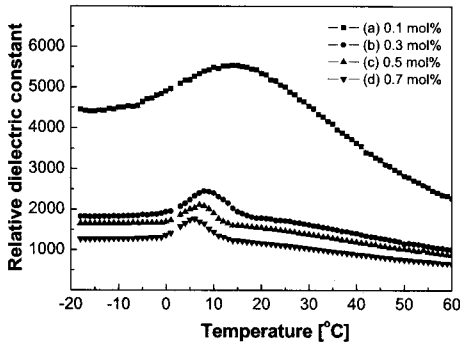
<그림 1> Dy₂O₃ 첨가량에 따른 BSCT(54/36/10) 후막의 XRD 패턴.

그림 2은 Dy₂O₃ 첨가량에 따른 BSCT 후막의 표면과 단면의 미세구조를 나타낸 그림이다. 시편의 표면의 미세구조에서 Grain size는 Dy₂O₃ 첨가량에 따라 감소하며, 기공률은 증가하는 것을 알 수 있다. 후막의 두께는 Dy₂O₃ 첨가량에 영향을 받지 않았으며, 평균두께는 69µm이었다.

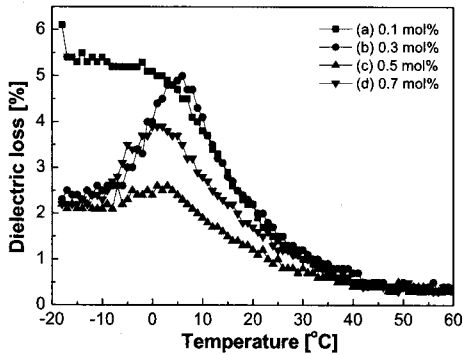


<그림 2> Dy₂O₃ 첨가량에 따른 BSCT(54/36/10) 후막의 표면과 단면의 미세구조

그림 3과 그림 4는 각각 Dy₂O₃의 첨가량과 온도에 따른 BSCT 후막의 유전상수와 유전손실을 나타낸 그래프이다. 큐리온도는 Dy₂O₃ 첨가량에 따라 감소하며 0.3 mol% 이상 첨가한 시편의 경우 유전상수 변화에 큰 영향을 미치는 것을 알 수 있다. 유전손실은 상온 이상에서 1%이하로 크게 감소하였다.



〈그림 3〉 Dy₂O₃의 첨가량과 온도에 따른 BSCT(54/36/10) 후막의 유전상수



〈그림 4〉 Dy₂O₃의 첨가량과 온도에 따른 BSCT(54/36/10) 후막의 유전손실

4. 결 론

본 연구에서는 (Ba_{0.54}Sr_{0.36}Ca_{0.10})TiO₃ 분말에 Dy₂O₃를 첨가하여 후막을 제작하고, Dy₂O₃ 첨가량에 따른 특성을 고찰하였다. 구조적 특성에서는 전형적인 페로브스카이트 구조를 나타내었으며, Dy₂O₃ 첨가량이 증가할수록 결정립은 작아지는 것을 알 수 있었다. 온도-유전 상수 그래프에서 큐리온도는 Dy₂O₃ 첨가량이 증가 할수록 낮아지는 경향을 보였으며 상온에서 1%미만의 우수한 유전 손실 값을 나타내었다.

[참 고 문 헌]

- [1] P. C. Joshi and M. W. Cole, "Mg-doped Ba_{0.6}Sr_{0.4}TiO₃ thin films for tunable microwave applications", Appl. Phys. Lett., Vol. 77, p. 289, 2000.
- [2] L. C. Sengupta, U. S. Patent, Vol. 5, p. 486, 1996.
- [3] A. J. Bell, Proc. of the 11th IEEE Int. Symp. On Application of Ferroelectrics, p. 14, 1995.